BEST AVAILABLE COPY

Catalyst arrangement

Patent Number:

DE3337903

Publication date:

1985-05-09

inventor(s):

REIF GERHARD (DE); BAUM WERNER (DE)

Applicant(s)::

REIF GERHARD; BAUM WERNER

Requested Patent:

DE3337903

Application Number: DE19833337903 19831019

Priority Number(s):

DE19833337903 19831019

IPC Classification:

B01D53/36; F01N3/20; B01J35/04; B01J35/06; B01J23/74

EC Classification:

B01D53/94K4, F01N3/28B2, F01N3/28B8, F01N3/28C, F01N3/28C8

Equivalents:

Abstract

A catalyst arrangement for reducing and oxidising pollutants in hot oxidising exhaust gases has, with respect to the direction of flow of the exhaust gas, firstly an oxidising region (10) and subsequently a reducing region (11). The region favouring oxidation is preferably formed as a catalyst filter (10). As a result it is possible to filter out, for example, soot from an exhaust gas and to burn it to carbon dioxide. As a result of this consumption of oxygen in the oxidising exhaust gas, only a more weakly oxidising exhaust gas passes into the reducing catalyst region (11), which can operate particularly effectively as a result. The catalyst arrangement is particularly suitable for converting pollutants in the exhaust gases of diesel engines.



Data supplied from the esp@cenet database - 12

THIS PAGE BLANK (USPTO)



₀₀ DĚ 3337903 A1



DEUTSCHES PATENTAMT (21) Aktenzeichen: Anmeldetag: Offenlegungstag:

P 33 37 903.3 19, 10, 83 9. 5.85

(51) Int. Cl. 3: B01 D 53/36

> F 01 N 3/20 B 01 J 35/04 B 01 J 35/06 B 01 J 23/74

DE 3337903 A

7) Anmelder:

Reif, Gerhard, 7114 Windischenbach, DE; Baum, Werner, 7101 Flein, DE

(72) Erfinder:

gleich Anmelder

difiniersionici.

(54) Katalysatoranordnung

Eine Katalysatoranordnung zum Reduzieren und zum Oxidieren von Schadstoffen in heißen oxidierenden Abgasen weist in Strömungsrichtung des Abgases gesehen zunächst einen oxidierenden Bereich (10) und dahinter einen reduzierenden Bereich (11) auf. Der die Oxidation begünstigende Bereich ist vorzugsweise als Katalysatorfilter (10) ausgebildet. Dadurch ist es möglich, aus einem Abgas zum Beispiel Ruß auszufiltern und in Kohlendioxid zu verbrennen. Durch diesen Verbrauch von Sauerstoff im oxidierenden Abgas gelangt nur noch ein schwächer oxidierendes Abgas zum reduzierenden Katalysatorbereich (11), der dadurch besonders wirksam arbeiten kann.

Die Katalysatoranordnung ist besonders zum Umwandeln von Schadstoffen in den Abgasen von Dieselmotoren geeignet.

OXIDIERENDES ABGAS NO .- HC - CO UND RUSS 10 KATALYSATOR-FILTER SCHWACHER OXIDIERENDES ABGAS OHNE RUSS ·\$____\$___\$ REDUZ. KATALYSATOR BEREICH 2NO, -> N2+02 UMGEWANDELTE **ABGAS** H20 - CO2- N2-02



Dr. Jean-Pierre Jeser Patentanwalt

Lerchenstraße 56 D-7100 Heilbronn

J/ho REBA-003

17. Okt. 1983

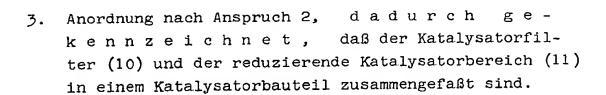
Gerhard Reif Pfedelbacher Str. 7 7114 Windischenbach Werner Baum Schillerstraße 18 7101 Flein

Katalysatoranordnung

ANSPRÜCHE

- 1. Katalysatoranordnung (15) mit einem Reduktionen begünstigenden Katalysatorbereich (11) und einem Oxidationen begünstigenden Katalysatorbereich (10) zum Umwandeln von Schadstoffen in heißen oxidierenden Abgasen in nicht schädliche Stoffe,
 - dadurch gekennzeichnet, daß der reduzierende Bereich (11) in Strömungsrichtung des Abgases hinter dem oxidierenden Bereich (10) angeordnet ist.
- 2. Anordnung nach Anspruch 1, dad ürch gekennzeichnet, daß der oxidierende Bereich ein Katalysatorfilter (10) zum Ausfiltern und Abtrennen von Ruß (20) ist.

BEST AVAILABLE COPY



- 5 4. Anordnung nach Anspruch 2 oder 3, dadurch ge-kennzeichnet, daß der Katalysatorfilter (10) ein auf ein metallisches Siebgewebe aufgebrachtes Katalysatormaterial aufweist.
- 5. Anordnung nach Anspruch 2 oder 3, dadurch ge10 kennzeichnet, daß der Katalysatorfilter (10) ein in einem Faservlies angeordnetes Katalysatormaterial aufweist.
- 6. Anordnung nach einem der Ansprüche 2 bis 5, dadurch gekennzeich net, daß das Katalysatormaterial des Katalysatorfilters (10) Eisenoxid ist.
 - 7. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, da-durch gekennzeichnet, daß die Anordnung gemäß Anspruch 1 eine erste Teilanordnung darstellt, zu der eine zweite Teilanordnung abgasmäßig parallel geschaltet ist, bei der ein zweiter reduzierender Katalysatorbereich (11.2) vor einem zweiten oxidierenden Katalysatorbereich (10.2) liegt (Fig. 2).
- 8. Anordnung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß auch der zweite oxidierende Bereich als Katalysatorfilter (10.2) ausgebildet ist.
 - 9. Anordnung nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß im Abgasstrom vor den beiden Teilanordnungen eine Lambdasonde (13) ange-

BEST AVAILABLE COPY

3337903

ordnet ist, die das Abgas in die erste Teilanordnung leitet, wenn es oxidierend wirkt, und in die zweite Teilanordnung leitet, wenn es reduzierend wirkt.

10. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, ge-5 kennzeichnet durch die Verwendung im Abgasstrom eines Dieselmotores.



BESCHREIBUNG

Die Erfindung betrifft eine Katalysatoranordnung gemäß dem Oberbegriff des Hauptanspruchs.

Eine solche Anordnung ist aus der DE-AS 26 49 825 bekannt. Ein oxidierendes Abgas von einem Verbrennungsmotor wird der Anordnung zugeführt, die zweigeteilt ist, wobei der 5 erste Bereich Reduktionen und der zweite Oxidationen fördert. Reduziert werden Stickoxide $\mathrm{NO}_{_{\mathbf{X}}}$ und oxidiert wird zum Beispiel Kohlenmonoxid CO. Der erste, reduzierende Bereich ist mit Rhodium und/oder Iridium als Katalysatormaterial beschichtet. Diese Edelmetalle sind in der Lage, die Reduk-10 tion von Stickoxiden $\mathrm{NO}_{\mathbf{x}}$ auch in oxidierender Atmosphäre herbeizuführen. Der zweite Bereich ist mit Platin und/oder Palladium als Katalysatormaterial beschichtet. Diese Elemente begünstigen die Oxidation von Kohlenmonoxid CO und von Kohlenwasserstoffen HC. 15

Die bekannte Katalysatoranordnung ist sehr teuer, da sie ausschließlich Edelmetalle als Katalysatormaterialien verwendet. Es ist wünschenswert, billigere Katalysatormaterialien zu verwenden, die aber häufig in ihrer Aktivität etwas gegenüber den Edelmetallen zurückbleiben.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Katalysatoranordnung der eingangs genannten Art anzugeben, die ohne Beeinträchtigung ihres Virkungsgrades auch mit schwächer aktiven und billigeren Katalysatormaterialien auskommt, oder bei Verwendung der gleichen Materialien einen höheren Wirkungsgrad aufweist.

Die erfindungsgemäße Lösung ist im Hauptanspruch gekennzeichnet. Vorteilhafte Ausgestaltungen und Weiterbildungen sind Gegenstand von Unteransprüchen.

20

Die erfindungsgemäße Katalysatoranordnung zeichnet sich dadurch aus, daß der reduzierende Bereich in Strömungsrichtung des Abgases nicht mehr vor, sondern hinter dem oxidierenden Bereich angeordnet ist. Dieser Anordnung liegt die Erkenntnis zugrunde, daß bei Anordnungen gemäß dem Stand der Tech-5 nik, wie sie außer aus der genannten DE-AS 26 49 825 auch noch in ähnlicher Weise aus der DE-OS 21 58 877 und der DE-AS 21 39 774 bekannt sind, der reduzierende Bereich mehr Sauerstoff zugeführt bekommt als der oxidierende Bereich. Dann müssen aber besonders gute Katalysatoren verwendet . 10 werden, um dennoch in oxidierender Atmosphäre die Reduktion und in ihrer Oxidationskraft geschwächter Atmosphäre die Oxidation begünstigen zu können. Beim erfindungsgemäßen Aufbau steht dagegen für die Oxidation die maximale Sauerstoffmenge aus dem Abgas zur Verfügung, während im reduzierenden 15 Bereich der Sauerstoffanteil durch die zuvor erfolgte Oxidation gewisser Schadstoffe des heißen Abgases bereits vermindert ist.

Besonders wirkungsvoll arbeitet die erfindungsgemäße Anordnung in Abgasen, die Rußbestandteile enthalten, wenn der
Rußbestandteil im oxidierenden Bereich ausgefiltert und
dort verbrannt wird. Ein solcher Katalysatorfilter ist für
sich aus der DE-OS 29 51 316 bekannt. Als Katalysatormaterial ist ein Metall oder ein Metalloxid auf ein metallisches Siebgewebe aufgebracht.

Als noch vorteilhafter hat es sich jedoch herausgestellt, das Katalysatormaterial nicht auf ein Metallsieb, sondern auf ein Faservlies aufzubringen, oder den Katalysator in Pulverform in das Faservlies einzubringen, entweder schon bei der Herstellung desselben oder durch nachträgliches Tauchen in eine Dispersion des Katalysatorpulvers.

DEST AVAILABLE COPY

Die Abbrenntemperatur von ausgefiltertem Ruß wird ganz besonders dann heruntergesetzt, wenn als Katalysatormaterial zum Begünstigen des Abbrennens Eisenoxid, Fe^{II} Fe₂ III O_n verwendet wird.

- Bei Abgasen von Gaserzeugern, die in unterschiedlichen Last-5 bereichen einmal oxidierende und andererseits reduzierende Abgase abgeben, istes von Vorteil, eine erfindungsgemäße Katalysatoranordnung mit einer bekannten parallel zu schalten, bei der ein reduzierender Katalysatorbereich vor einem oxidierenden Bereich liegt. Das Umschalten zwischen den bei-10 den parallel liegenden Teilanordnungen wird durch eine Lambdasonde im Abgasstrom vorgenommen, die ermittelt, ob das Abgas oxidierend oder reduzierend ist.
- Abgaserzeuger, die überwiegend oxidierende Abgase liefern, sind zum Beispiel Dieselmotoren. Daher ist die Anwendung 15 einer erfindungsgemäßen Katalysatoranordnung bei diesen Motoren besonders vorteilhaft, insbesondere wenn der oxidierende Bereich als Katalysatorfilter ausgebildet wird.
- Die Erfindung wird im folgenden an Hand von Figuren näher erläutert. Es zeigen: 20
 - Ein Flußdiagramm über den Strom von Abgas durch Fig. 1 verschiedene Katalysatorbereiche;
- ein Flußdiagramm des Stromes von Abgas durch Fig. 2 verschiedene Katalysatorbereiche zweier umschaltbarer Katalysator-Teilanordnungen; und 25
 - einen schematischen Querschnitt durch eine in Fig. 3 einem Gehäuse angeordnete Katalysatoranordnung.

BEST AVAILABLE COPY

Gemäß Fig. 1 strömt ein oxidierendes Abgas, zum Beispiel von einem Dieselmotor, in einen Katalysatorfilter 10. Das Abgas enthält zum Beispiel Stickoxide NO_X, Kohlenwasserstoffe HC, Kohlenmonoxid CO und Ruß C. Der Katalysatorfilter 10 wirkt oxidierend, stellt also den oxidierenden Bereich einer Katalysatoranordnung dar. Demgemäß werden durch den Katalysator Kohlenwasserstoffe durch Umsetzen mit Sauerstoff in Wasser und Kohlendioxid und Kohlenmonoxid in Kohlendioxid umgesetzt. Ruß C bleibt am Filter hängen und wird ebenfalls in Kohlenmonoxid verbrannt.

Das den Katalysatorfilter 10 verlassende Abgas enthält keine oxidierbaren Teile, insbesondere keinen Ruß mehr.

Durch das Umsetzen der oxidierbaren Gasbestandteile und durch das Verbrennen des Rußes wirkt das den Katalysatorfilter 10 verlassende Abgas aber schwächer oxidierend als das Abgas, das in ihn eingeleitet worden ist. Dieses schwächer oxidierende Abgas wird einem reduzierenden Katalysatorbereich 11 zugeleitet, in dem, in der immer noch oxidierend wirkenden Atmosphäre, Stickoxid NO_x in Stickstoff und

20 Sauerstoff aufgespalten werden. Katalysatormaterialien, die eine solche Reduktion in oxidierender Atmosphäre ermöglichen, sind zum Beispiel Rhodium oder Iridium oder Raney-Kobalt.

Durch die Wirkung der Katalysatoranordnung mit dem oxidierend wirkenden Katalysatorfilter 10 und dem reduzierend wirkenden Katalysatorbereich 11 sind die aufgezählten Schadstoffe schließlich in Wasser, Kohlendioxid, Stickstoff und Sauerstoff umgewandelt.

Es ist auch möglich, die Anordnung gemäß Fig. 1 als Teilanordnung zusammen mit einer herkömmlichen Anordnung anzuwenden, wie dies in Fig. 2 dargestellt ist. Dies empfiehlt sich dann, wenn das Abgas abhängig von unterschiedlichen

Verbrennungsbedingungen einmal oxidierend und einmal reduzierend wirken kann, wie dies vor allem bei Dieselmotoren und bei Hausbrand-Abgasen vorkommt. Zu diesem Zweck ist in die Abgasleitung 12 vom Abgaserzeuger eine Lambdasonde 13 geschaltet. Derartige Lambdasonden ermitteln, ob Gasatmosphären von Abgasen einen Sauerstoffüberschuß in bezug auf oxidierbare Abgasbestandteile enthalten oder nicht, d. h. ob das Abgas oxidierend oder reduzierend ist. Wird ein oxidierendes Abgas festgestellt, so erfolgt ein Umschalten auf eine obere Teilanordnung, die genauso wie die Anordnung in Fig. 1 aufgebaut ist und ein erstes Katalysatorfilter 10.1 und einen ersten reduzierenden Katalysatorbereich 11.1 aufweist.

Ermittelt die Lambdasonde dagegen ein reduzierend wirkendes
Abgas, so schaltet sie auf die in Fig. 2 unten eingezeichnete zweite Teilanordnung um, die ähnlich wie herkömmliche Katalysatoranordnungen aufgebaut ist. Es ist jedoch zu beachten, daß für den oxidierend wirkenden Katalysatorbereich bei der unteren Teilanordnung ein zweites Katalysatorfilter 10.2 verwendetiist, was von herkömmlichen Anordnungen nicht bekannt ist, wo nicht filternde oxidierende Katalysatorbereiche verwendet werden.

Die untere Teilanordnung gemäß Fig. 2 weist vor dem bereits erwähnten zweiten Katalysatorfilter 10.2 einen zweiten reduzierenden Katalysatorbereich 11.2 auf. Diesem werden nach dem Umschalten durch die Lambdasonde die reduzierenden Abgase von der Abgasleitung 12 zugeführt. Es erfolgt dann ein Umwandeln von Stickoxiden NO in Stickstoff und Sauerstoff. Das Abgas aus dem reduzierend wirkenden Katalysatorbereich 11.2 wird mit Sauerstoff vermischt, wodurch ein oxidierendes Abgas gebildet wird, das noch Kohlenwasserstoffe, Kohlenmonoxid und Ruß C aufweist. Der zugeführte Sauerstoff

25

30

1

5

Ų

9 -

rührt von zugeführter Verbrennungsluft her, welches Zuführen ebenfalls durch die Lambdasonde 13 gesteuert wird.

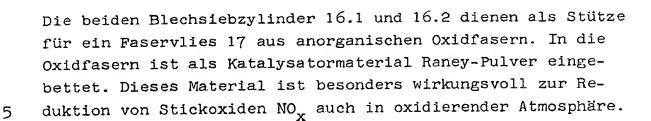
Imzweiten Katalysatorfilter 10.2 wird der Ruß ausgefiltert und bei niedriger Temperatur zu Kohlendioxid CO₂ verbrannt. In diesem oxidierend wirkenden Katalysatorbereich werden auch die Kohlenwasserstoffe und das Kohlenmonoxid in Wasser und Kohlendioxid umgewandelt.

Das Umschalten durch die Lambdasonde 13 ermöglicht es, Schadstoffe in oxidierenden Abgasen immer mit optimalem Wirkungsgrad in Wasser, Kohlendioxid, Stickstoff und Sauerstoff umzuwandeln.

Bei den Flußplänen gemäß den Fig. 1 und 2 sind die oxidierend wirkenden Katalysatorbereiche als Katalysatorfilter 10 ausgebildet. Diese Filter finden, wie oben bereits erwähnt, dann Anwendung, wenn das Abgas Ruß enthält, also zum Bei-15 spiel von einem Dieselmotor oder von Hausbrand herrührt. In diesem Fall wirkt die anmeldegemäße Anordnung besonders stark, da dann eine besonders starke Absenkung des oxidierenden Anteils im Abgas erfolgt, so daß der nachgeschaltete reduzierende Katalysatorbereich besonders effektiv arbeiten 20 kann. Für Abgase, die keinen Ruß enthalten, wie z. B. die Ottomotoren, ist es aber auch möglich, Abgase von den oxidierenden Katalysatorbereich in herkömmlicher Art und Weise, also nicht filternd, auszubilden.

Der Querschnitt gemäß Fig. 3 zeigt eine in einem Gehäuse 14 angeordnete Katalysatoranordnung 15. Diese weist einen inneren Blechsiebzylinder 16.1 und einen konzentrisch mit diesem angeordneten mittleren Blechsiebzylinder 16.2 auf. Diese sind genauso ausgebildet wie herkömmliche Blechsiebzylinder von Luftfiltern.

5



Nach außen schließt sich an den mittleren Blechsiebzylinder 16.2 ein Sternfilter 18 an, das mit einem oxidierend wirkenden Katalysatormaterial beschichtet ist. Der Sternfilter 18 wirkt als Katalysatorfilter 10 gemäß den Fig. 1 und 2. Besteht der Sternfilter 18 aus einem Metallgewebe, so ist er selbsttragend und bedarf keines weiteren Haltes. Ist der Sternfilter dagegen aus einem Faservlies gefertigt, so ist außen um ihn noch ein äußerer Blechsiebzylinder 16.3 angeordnet, der in Fig. 3 gestrichelt dargestellt ist.

Oxidierendes Abgas, das Stickoxide ${\rm NO}_{_{\rm X}}$, Kohlenwasserstoffe HC, 15 Kohlenmonoxid CO und Ruß C enthält, wird durch eine Zuführöffnung 19 dem Inneren des Gehäuses 14 und damit der Katalysatoranordnung 15 zugeführt. Es durchströmt den äußeren Blechsiebzylinder 16.3 und den Sternfilter 18, von dem jedoch die im Abgas enthaltenen Rußteilchen 20 zurückgehalten 20 werden. Die Rußteilchen 20 sind in Fig. 3 als einzelne Körner dargestellt. Tatsächlich bilden sie jedoch Agglomerate unterschiedlich großer Abmessungen. Diese Rußteilchen 20 bzw. eine aus ihnen gebildete Rußschicht wird bei relativ niedrigen Abgastemperaturen von etwa 300 °C am Sternfilter 18 abge-25 brannt. Dabei wird Sauerstoff verbraucht, so daß nur noch geringer oxidierendes Abgas durch den mittleren Blechsiebzylinder 16.2 zum reduzierend wirkenden Faservlies 17 strömt. Dort werden Stickoxide NO_x in Stickstoff umgewandelt. In das Innere des inneren Blechsiebzylinders 16.1 30 strümt dann Abgas, das keine Schadstoffe, sondern nur noch

Ļ

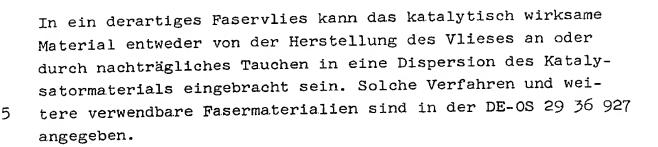
die Umwandlungsprodukte Wasser, Kohlendioxid, Stickstoff und Sauerstoff enthält. Dieses Abgas wird durch eine nicht dargestellte Öffnung weggeleitet.

Der Aufbau gemäß Fig. 3 kann zahlreiche Abwandlungen erfahren. Insbesondere ist zu beachten, daß die Zuführöffnung 19 in das Gehäuse 14 eher schematisch dargestellt ist. Es wird eine solche Zuführung gewählt, die optimale Strömungsverhältnisse ergibt. Dies ist insbesondere dann wichtig, wenn die Katalysatoranordnung 15 bei einem Verbrennungsmotor verwendet wird. Abhängig vom Abgaserzeuger, dessen Abgase umgewandelt werden müssen, werden mehr reduzierende oder mehr oxidierende Schadstoffe anfallen. Abhängig davon sind der Aufbau, insbesondere die Abmessungen in Strömungsrichtung des oxidierenden bzw. des reduzierenden Katalysatorbereiches zu wählen.

Der Sternfilter 18 kann zum Beispiel aus einem mit Metallen oder Metalloxiden als Katalysatormaterialien beschichteten metallischen Siebgewebe bestehen, wie es in der DE-OS 29 51 316 beschrieben ist. Eine größere Tiefe des Sternfilters 18 in Durchströmungsrichtung der Abgase ergibt sich dann, wenn statt eines Metallsiebes ein Faservlies verwendet wird, in das oxidierend katalytisch wirksame Bestandteile eingebettet sind. Bei Verwendung eines solchen Faservlieses ist die Maschenweite größer als der mittlere Durchmesser vonRußteilchen, die aber trotzdem auf Grund der vielen aufeinanderfolgenden Fasern zurückgehalten werden. Die Rußteilchen weisen vor ihrer Agglomeration einen Durchmesser von etwa 25 - 250 nm auf.

Als Faservlies kann zum Beispiel ein solches verwendet wer-30 den, wie es unter der Bezeichnung "Cerablanket" oder "Cerachrome" von der Firma Manville, Frankreich erhältlich ist.

20



Die Abbrenntemperatur von Ruß beträgt normalerweise etwa 800 °C. Wird der Ruß mit einem Faservlies ausgefiltert, so sinkt die Abbrenntemperatur auf etwa 560 - 580 °C, da derartige Faservliese, insbesondere wenn sie Al₂O₃ enthalten, bereits katalytisch aktiv sind. Noch weiter läßt sich die Abbrenntemperatur heruntersetzen, wenn als katalytisch wirksames Material Eisenoxid, Fe^{II}Fe₂ III O₄, verwendet wird. Dies gilt ganz allgemein, unabhängig davon, ob dieses Material zusammen mit einem reduzierenden Bereich verwendet wird oder nur für sich. Mit Eisenoxid als Katalysator, entweder auf einem Metallsieb oder in einem Faservlies, läßt sich die Abbrenntemperatur auf etwa 300 °C herabsetzen.

Für das Faservlies 17, das das reduzierend wirkende Katalysatormaterial enthält, gilt das entsprechende, was soeben für ein Faservlies zur Aufnahme oxidierend wirkender Katalysatormaterialien angegeben wurde. Als Stickoxide reduzierende Katalysatormaterial ist pulverförmiges Raney-Kobalt besonders geeignet. Dieses kannaber statt in ein Faservlies eingebettet auch auf einen metallischen Träger aufgebracht sein. Dieser ist dann so anzuordnen, daß sich eine besonders große wirksame Oberfläche für durchströmendes Abgas ergibt.

Die anmeldegemäße Anordnung arbeitet besonders wirkungsvoll, da die Oxidation von Schadstoffen dann vorgenommen wird, wenn das Abgas noch besonders viel Oxidationsmittel aufweist und die Reduktion erst vorgenommen wird, wenn ein

10

15

20

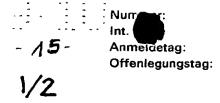
25

- 13 -

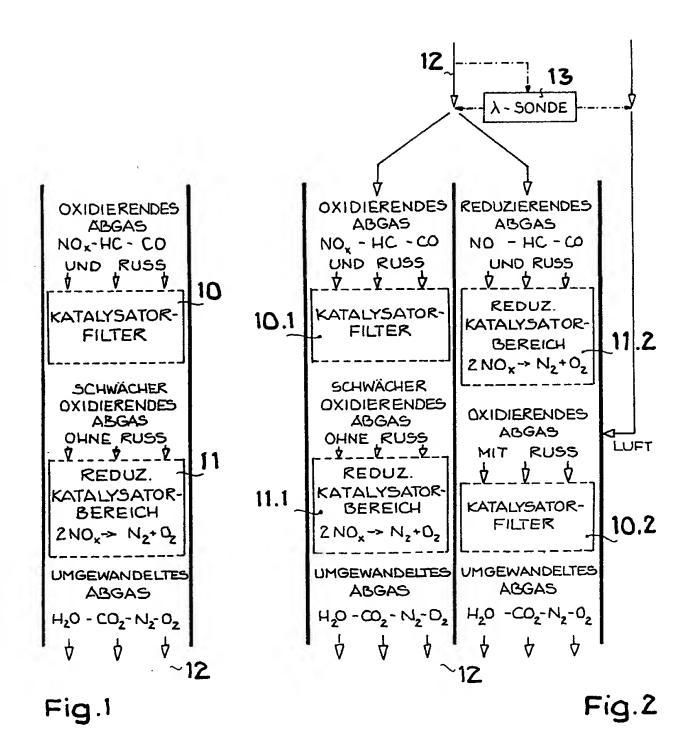
Teil des Oxidationsmittels bereits im oxidierend wirkenden Bereich verbraucht ist. Werden gleich gute Katalysatoren verwendet wie bisher, so ergibt sich dadurch eine Verbesserung der Wirkung. Werden billige, nicht so wirksame Katalysatoren eingesetzt, so ergibt sich dennoch der gleiche Wirkungsgrad wie bisher. Die erhöhte Wirksamkeit der Anordnung ermöglicht es auch, ohne Einbuße des Wirkungsgrades im Vergleich zu bisher, die Anordnung kompakter aufzubauen, also insbesondere ein Katalysatorfilter und den reduzierenden Bereich in einem Katalysatorbauteil zusammenzufassen.

BEST AVAILABLE COPY

5

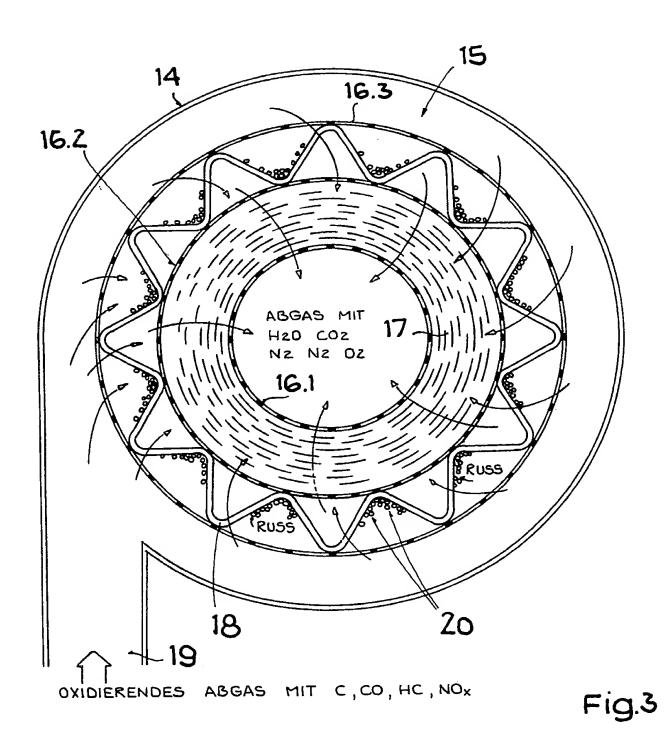


33 37 903 B 01 D 53/36 19. Oktober 1983 9. Mai 1985



BEST AVAILABLE COPY

. 14-



BEST AVAILABLE COPY